



TITLE:

Study on Suspect and Non-Target Screening
of Per- and Polyfluoroalkyl Substances
(PFASs) by Ion Mobility Mass Spectrometry(
Abstract_要旨)

AUTHOR(S):

Yukioka, Satoru

CITATION:

Yukioka, Satoru. Study on Suspect and Non-Target Screening of Per- and Polyfluoroalkyl Substances (PFASs) by Ion Mobility Mass Spectrometry. 京都大学, 2020, 博士(地球環境学)

ISSUE DATE:

2020-03-23

URL:

<https://doi.org/10.14989/doctor.k22617>

RIGHT:

許諾条件により本文は2021-01-01に公開

京都大学	博士（地球環境学）	氏名	雪岡 聖
論文題目	Study on Suspect and Non-Target Screening of Per- and Polyfluoroalkyl Substances (PFASs) by Ion Mobility Mass Spectrometry（イオンモビリティ質量分析によるペルおよびポリフルオロアルキル物質（PFASs）のSuspect and Non-Target Screening に関する研究）		
<p>（論文内容の要旨）</p> <p>現在、環境残留性が問題視されているペルおよびポリフルオロアルキル物質（PFASs）は、4,000種以上存在すると報告されている。その中でも消火剤由来の水環境汚染が懸念されているが、その存在実態に関する情報は一部の代表物質に限られている。その解決策として、近年、多種多様に存在するPFASsの存在を明らかにするために精密質量分析装置を用いたスクリーニング分析が行われているが、イオンモビリティ質量分析の適用事例は少ない。</p> <p>本論文は、消火剤由来のPFASsの汚染が懸念される水域および浄水処理工程におけるSuspect screeningによるプロファイル解析およびイオンモビリティ質量分析装置を用いた迅速かつデータに依存しない物質同定方法を開発したもので、7章からなっている。</p> <p>第1章は序論であり、研究の背景と本研究の目的を記している。現在、PFASsの代表物質であるペルフルオロオクタンスルホン酸（PFOS）およびペルフルオロオクタン酸（PFOA）の規制の厳格化に伴い、多種多様なPFASsが使用され、汚染が複雑化している。人への健康影響が懸念される浄水場水源で、消火剤由来のPFASsの汚染解析が求められていること、イオンモビリティ質量分析装置のスクリーニング分析への適用に関する知見は限られていることなど、研究の動機を示している。</p> <p>第2章は文献考察であり、PFASsの概要、消火剤由来の汚染に関する調査・実験の事例、精密質量分析装置を用いたスクリーニン分析に関する研究事例、イオンモビリティ質量分析に関する内容が記されている。以降の章での調査・実験・解析に先立ち、多種多様に存在するPFASsの分類とその位置づけを考慮した上で、最新の消火剤由来のPFASs汚染に関する知見を集約し、その課題点を示している。さらに従来のスクリーニング分析の到達点とその課題を抽出するとともに、イオンモビリティ質量分析を用いた最新の研究事例を示した。</p> <p>第3章は、調査概要、前処理、スクリーニング等分析方法を示している。2019年に沖縄県の消火剤由来のPFASs汚染が懸念されている河川水、地下水およびそれらを水源とする浄水場の処理工程水を対象に調査を実施した。既存のSuspect screening listsを用いたスクリーニング分析の手順を示すとともに、プロファイル解析手法を示した。さらに候補物質の同定レベルを上げるためのイオンモビリティ質量分析を用いた関連イオンの紐づけ方法を示した。</p> <p>第4章では、沖縄県の消火剤由来のPFASs汚染が懸念されている水域を対象に、スクリーニング分析によるプロファイル解析を行った結果を述べている。116種類のPFASsの内、約40%の物質は2021年に規制される可能性があることを明らかにした。さらに、それらは環境中もしくは浄水処理工程中で前駆体から最終分解生成物であるペルフルオロアルキル酸類（PFAAs）に分解する可能性を示した。</p>			

第 5 章では、前章のスクリーニング分析で抽出された候補物質の同定レベルを上げるために、イオンモビリティ質量分析装置により、**Drift time** による前駆イオンと断片イオンを紐づける方法を提案している。本手法は、環境汚染物質の定性分析分野では報告例のない画期的な手法である。さらに、共溶出イオンの強度の情報をもとに本紐づけ方法を評価した結果、99 種類の PFASs の内 15-43 種類の PFASs (37-49%) に有効であり、本手法の環境試料への実用性を示した。

第 6 章では、データベースや **Suspect screening list** に集約されている既知 PFASs 以外の未知 PFASs を対象に、消火剤を実試料として、その探索方法を示している。PFASs の特徴である断片イオンとしてフッ化アルキルイオンを生成することに着目し、それらを標識として活用する方法 (**Fragmentation flagging**) を応用し、その解析手順を示している。さらに、その **Fragmentation flags** から前駆イオンを探索する方法として、前章と同様の手法でイオンモビリティ質量分析を用いた **Drift time** による紐づけの有効性を示した。

第7章は結論であり、各章で示された主要な成果をまとめ、さらに考察を加え、本論文の地球環境学における意義を述べている。

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、環境残留性が問題視されているペルおよびポリフルオロアルキル物質 (PFASs) が4,000種以上存在すると報告されている中、消火剤由来のPFASsの汚染が懸念される水域におけるSuspect screeningによるプロファイル解析およびイオンモビリティ質量分析装置を用いた迅速かつデータに依存しない物質同定方法の有効性を示した。

本成果は、現代の水環境における微量化学物質の汚染の現象理解の深化につながり、汚染物質の適切かつ効率的な制御・管理に貢献するという点で、学術的に重要な意義をもつ。その理由として、多種多様なPFASsを体系的かつ効果的に管理する手法として、環境残留性を示す基盤構造を標識として活用した分析法を提案していることが挙げられる。さらに本分析法は、対象物質を基盤構造で評価するとともに、断片イオンのデータベースに基づく解析手法であるため、従来の分析法のみでは見逃されてきた新たな未知のPFASsによる汚染を正確に理解することができる。これらは地球環境学・環境工学の進展に寄与し、当該学問領域における先駆的かつ重要な基盤となる研究成果であるといえる。

本研究の持つ地球環境学における意義として、残留性有機汚染物質による汚染は、地球規模で人の健康や生態系へ悪影響を及ぼす可能性があり、21世紀の人類社会において優先されるべき国際問題である。特に、発癌性が疑われているPFASsの汚染の原因と機構を解明し、その管理方法・解決策を提示することは、喫緊の課題であるといえる。本論文で示した測定法は多種多様なPFASsの体系的かつ効果的な管理方法の提案につながり、地球環境保全に貢献することが期待できる。これらは学際的かつ実践的な研究事例として、地球環境学の発展に寄与する研究成果である。

本研究は学術誌への公表に留まらず、浄水場関連施設など現場への普及による社会貢献が大いに期待できる研究事例である。その理由として、現代における産業や生活形態の変化に伴い、評価・管理対象となる化学物質が増加傾向にあり、水域管理をする行政にとってモニタリングの時間やコストに歯止めがかからず、大きな負担となっていることが挙げられる。本研究成果は、健全な水循環システムの実現に向けた統合的な対策につながる事例であり、微量化学物質管理手法の分野における先駆的かつ重要な基盤となる研究である。これらは国内の社会貢献のみならず国際貢献も大いに期待できる研究事例である。

以上の成果により、本研究は地球環境学の発展に大きく貢献した。よって本論文は博士（地球環境学）の学位論文として価値あるものと認める。また、令和2年2月5日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。